

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: Hiroyuki YASUI et al.
Title: GAS PURIFYING SYSTEM, GAS PURIFYING METHOD AND
DISCHARGE REACTION APPARATUS UTILIZED FOR GAS
PURIFYING SYSTEM
Appl. No.: Unassigned
Filing Date: 10/01/2003
Examiner: Unassigned
Art Unit: Unassigned

CLAIM FOR CONVENTION PRIORITY

Commissioner for Patents
PO Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign applications filed in the following foreign country is hereby requested, and the right of priority provided in 35 U.S.C. § 119 is hereby claimed.

In support of this claim, filed herewith are certified copies of said original foreign applications:

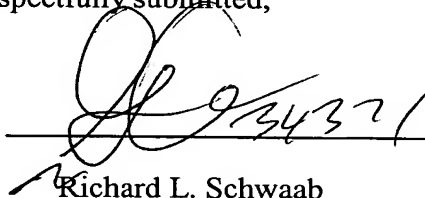
- JAPAN Patent Application No. 2002-289981 filed 10/02/2002.
- JAPAN Patent Application No. 2003-054888 filed 02/28/2003.

Respectfully submitted,

Date October 1, 2003

FOLEY & LARDNER
Customer Number: 22428
Telephone: (202) 672-5414
Facsimile: (202) 672-5399

By



Richard L. Schwaab
Attorney for Applicant
Registration No. 25,479

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2002年10月 2日

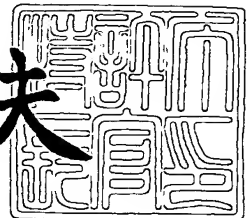
出願番号
Application Number: 特願2002-289981
[ST. 10/C]: [JP 2002-289981]

出願人
Applicant(s): 株式会社東芝

2003年 9月 9日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3073803

【書類名】 特許願

【整理番号】 3DB0290021

【提出日】 平成14年10月 2日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B01D 53/00

【発明の名称】 ガス浄化装置およびガス浄化方法

【請求項の数】 16

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県横浜市鶴見区末広町二丁目 4 番地 株式会社東芝 京浜事業所内

 【氏名】 安井 祐之

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 株式会社東芝 本社事務所内

 【氏名】 荒木 邦行

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 株式会社東芝 本社事務所内

 【氏名】 飛田 義男

【特許出願人】

 【識別番号】 000003078

 【氏名又は名称】 株式会社 東芝

【代理人】

 【識別番号】 100078765

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 波多野 久

【選任した代理人】

【識別番号】 100078802

【弁理士】

【氏名又は名称】 関口 俊三

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011899

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ガス浄化装置およびガス浄化方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 浄化対象ガスが流れるガス流路に放電反応部が設けられ、この放電反応部の内部には粒子状物質捕捉機能を有するフィルタ構造体が前記浄化対象ガスがその内部を通過可能に設けられる一方、前記放電反応部には放電発生用電源が接続され、この放電発生用電源は、前記放電反応部の内部に電界を形成するとともに放電プラズマを発生し、フィルタ構造体の内部において前記浄化対象ガスに含まれる粒子状物質がフィルタ構造体の粒子状物質捕捉機能に加えて電界の形成に伴う電気集塵的效果により捕捉され、さらに捕捉された粒子状物質は、前記放電プラズマの作用により燃焼処理され、前記フィルタ構造体の粒子状物質捕捉機能が再生されるように構成したことを特徴とするガス浄化装置。

【請求項 2】 前記フィルタ構造体は、複数の固体物質を充填して構成されることを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 3】 前記フィルタ構造体は、繊維状物質を充填して構成されることを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 4】 前記フィルタ構造体は、ハニカム構造あるいはモノリス構造であることを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 5】 前記フィルタ構造体は、比誘電率が 3 以上の誘電体で構成されることを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 6】 前記放電反応部の内部に酸化触媒を設け、放電プラズマに加えこの酸化触媒の作用により前記粒子状物質を燃焼処理するように構成したことを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 7】 前記ガス流路に酸化触媒を設け、放電プラズマに加えこの酸化触媒の作用により前記粒子状物質を燃焼処理するように構成したことを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 8】 前記放電プラズマは低温プラズマであることを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 9】 前記放電反応部より上流のガス流路に上流側切換部を設け、

この上流側切換部において複数のガス流路に分岐させ、分岐した各ガス流路にそれぞれ放電反応部を設け、さらに前記上流側切換部により前記浄化対象ガスが流れる放電反応部を選択することが可能となるように構成したことを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 1 0】 前記各放電反応部より下流のそれぞれのガス流路を共通の下流側切換部で合流させ、前記浄化対象ガスが流れるガス流路に切換可能に構成したことを特徴とする請求項 9 記載のガス浄化装置。

【請求項 1 1】 前記フィルタ構造体は、窒素酸化物を還元分解するための還元分解触媒を具備し、前記放電反応部で放電プラズマの作用で発生した化学種により前記浄化対象ガスに含まれる窒素酸化物を還元分解するように構成したことを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 1 2】 前記放電反応部より下流のガス流路に、窒素酸化物を還元分解するための還元分解触媒を具備する触媒反応部を設け、この触媒反応部において、前記放電反応部で放電プラズマの作用で発生した化学種により前記浄化対象ガスに含まれる窒素酸化物を還元分解するように構成したことを特徴とする請求項 1 記載のガス浄化装置。

【請求項 1 3】 前記還元分解触媒は、Pt 等の貴金属を具備しない還元分解触媒であることを特徴とする請求項 1 1 または 1 2 記載のガス浄化装置。

【請求項 1 4】 前記放電反応部より上流のガス流路に、炭化水素種添加機構を設け、ガス状の炭化水素種を前記浄化対象ガスに添加するように構成したことを特徴とする請求項 1 1 または 1 2 記載のガス浄化装置。

【請求項 1 5】 前記放電反応部より上流のガス流路に、炭化水素種添加機構を設け、固体あるいは液体の炭化水素種をガス化して前記浄化対象ガスに添加するように構成したことを特徴とする請求項 1 1 または 1 2 記載のガス浄化装置。

【請求項 1 6】 粒子状物質を含む浄化対象ガスが流れるガス流路に、前記浄化対象ガスが通過可能で前記粒子状物質を捕捉可能なフィルタ構造体を設け、電界の形成に伴う電気集塵的效果により前記フィルタ構造体において前記粒子状物質を捕捉するため、放電プラズマの作用により捕捉される前記粒子状物質を燃

焼処理するために、前記フィルタ構造体を含む領域に電界を形成するとともに放電プラズマを発生させることを特徴とするガス浄化方法。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、粒子状物質、窒素酸化物等の有害物質を含む浄化対象ガスから有害物質を除去して浄化するガス浄化装置およびガス浄化方法に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

従来、エンジン等の排ガス発生源から排出された排ガスから粒子状物質（PM；Particulate Matter）、窒素酸化物（NO_x）等の有害物質を浄化するためのガス浄化装置として以下のものがある。

【0 0 0 3】

PMを除去するための従来のガス浄化装置としては、PMを含む排ガスのガス流路にPMフィルタを設け、このPMフィルタによりPMを捕捉する装置がある。そして、PMフィルタに捕捉されたPMに含まれる炭素等の物質は加熱ヒータにて燃焼除去され、PMフィルタの機能が再生される（例えば、特許文献1参照）。

【0 0 0 4】

一方、NO_xを除去するための従来のガス浄化装置としては、NO_xを含む排ガスのガス流路にNO_xを還元分解する三元触媒を設け、還元分解するように構成された装置がある。この三元触媒には、活性化のためにPt等の貴金属が担持される（例えば、特許文献2参照）。

【0 0 0 5】

【特許文献1】

特開平11-062558号公報（第3頁-第5頁、図1）

【0 0 0 6】

【特許文献2】

特開2002-045701号公報（第3頁-第4頁、図1）

【0 0 0 7】

【発明が解決しようとする課題】

従来のPMを除去するガス浄化装置においては、PMフィルタに捕捉されたPMに含まれる炭素等の物質を酸素との燃焼反応により除去するため、ガスの温度が6 0 0℃程度となるように加熱する必要がある。

【0 0 0 8】

一方、NO_xを除去する従来のガス浄化装置においては、還元触媒の動作温度は通常3 0 0℃以上であり、排ガス温度が3 0 0℃以下の温度域では、触媒の活性が低く、十分なNO_xの還元による分解ができない。さらに、NO_xを還元分解する過程において有害である亜酸化窒素（N₂O）が副生される。

【0 0 0 9】

従って、いずれのガス浄化装置においても排ガスを加熱するための外部加熱ヒータ源の追設が必要となり、逆に排ガス温度が、低温（特に2 0 0℃以下）である場合にはPMあるいはNO_xを効率良く除去することができない。

【0 0 1 0】

本発明はかかる従来の事情に対処するためになされたものであり、粒子状物質、窒素酸化物等の有害物質を含む浄化対象ガスから有害物質を加熱することなく低温でより効率的に除去し、浄化対象ガスを浄化することができるガス浄化装置およびガス浄化方法を提供することを目的とする。

【0 0 1 1】**【課題を解決するための手段】**

本発明に係るガス浄化装置は、上述の目的を達成するために、請求項1に記載したように、浄化対象ガスが流れるガス流路に放電反応部が設けられ、この放電反応部の内部には粒子状物質捕捉機能を有するフィルタ構造体が前記浄化対象ガスがその内部を通過可能に設けられる一方、前記放電反応部には放電発生用電源が接続され、この放電発生用電源は、前記放電反応部の内部に電界を形成するとともに放電プラズマを発生し、フィルタ構造体の内部において前記浄化対象ガスに含まれる粒子状物質がフィルタ構造体の粒子状物質捕捉機能に加えて電界の形成に伴う電気集塵的效果により捕捉され、さらに捕捉された粒子状物質は、前記放電プラズマの作用により燃焼処理され、前記フィルタ構造体の粒子状物質捕捉

機能が再生されるように構成したことを特徴とするものである。

【0012】

また、本発明に係るガス浄化方法は、上述の目的を達成するために、請求項16に記載したように、粒子状物質を含む浄化対象ガスが流れるガス流路に、前記浄化対象ガスが通過可能で前記粒子状物質を捕捉可能なフィルタ構造体を設け、電界の形成に伴う電気集塵的效果により前記フィルタ構造体において前記粒子状物質を捕捉するため、放電プラズマの作用により捕捉される前記粒子状物質を燃焼処理するために、前記フィルタ構造体を含む領域に電界を形成するとともに放電プラズマを発生させることを特徴とするものである。

【0013】

【発明の実施の形態】

本発明に係るガス浄化装置の実施の形態について添付図面を参照して説明する。

【0014】

図1は本発明に係るガス浄化装置の第1の実施形態を示す構成図である。

【0015】

ガス浄化装置1は、浄化対象ガス発生機構2からのガス流路3中に放電反応部4を設け、この放電反応部4の反応容器4aの内部にフィルタ構造体5を設けた構成である。フィルタ構造体5は、その内部を浄化対象ガスXが流れることができるように構成され、浄化対象ガスXに含まれる有害物質である粒子状物質（PM；Particulate Matter）を捕捉する粒子状物質捕捉機能を有する。

【0016】

浄化対象ガス発生機構2の具体例としては、例えば、自動車用エンジン、車両用発電機駆動原動機や船舶推進用原動機等の車載ディーゼルエンジンおよびガソリンエンジン、車両、船舶、航空機等の移動体に搭載される発電用ディーゼルエンジンおよびガソリンエンジン、コージェネレーション（熱電供給）システムや発電システムに用いられる定置型ディーゼルエンジンおよびガスエンジン（ガスマータ）が挙げられる。

【0017】

そして、これらの浄化対象ガス発生機構 2 に燃料として例えば A 重油、C 重油等の重油、軽油、ガソリン、都市ガス、メタン、プロパンが使用されて排出される排ガスが浄化対象ガス X とされる。

【 0 0 1 8 】

また、放電反応部 4 には、電気ケーブル 6 を介して放電発生用電源 7 が接続される。この放電発生用電源 7 からの電圧印加により、放電反応部 4 に放電プラズマが生成される一方、電界による電気集塵的效果により PM がフィルタ構造体 5 内に捕捉される。また、放電プラズマによる O、OH、O₃ 等の酸化ラジカルが生成され、この酸化ラジカルの酸化作用により捕捉された PM が燃焼され、逐次 C O₂ に燃焼処理される。

【 0 0 1 9 】

図 2 は、図 1 に示す放電発生用電源 7 に接続される電極の構成例および放電反応部 4 の詳細構成例を示す図である。

【 0 0 2 0 】

管状のガス流路 3 中に例えば筒状の放電反応部 4 が設けられる。さらに、放電反応部 4 の内部には例えばブロック形状のフィルタ構造体 5 が設けられる一方、側面 1 1 には絶縁材で構成されるコネクタ 1 0 が設けられる。

【 0 0 2 1 】

また、フィルタ構造体 5 の内部には放電反応部 4 の長手方向を向く柱状の電極棒 1 2 が設けられる。

【 0 0 2 2 】

一方、放電反応部 4 の外部には、放電発生用電源 7 が設けられ、この放電発生用電源 7 の一方の極、例えば高電圧極側は電気ケーブル 6 を介してコネクタ 1 0 に接続される。さらに、コネクタ 1 0 とフィルタ構造体 5 の内部の電極棒 1 2 とが電気ケーブル 6 を介して接続される。

【 0 0 2 3 】

また、放電発生用電源 7 の他方の極、例えば接地極側は電気ケーブル 6 を介して放電反応部 4 の側面 1 1 に接続されるとともに接地される。すなわち、放電反応部 4 の内部の側面 1 1 は接地電極として機能する。

【 0 0 2 4 】

放電発生用電源 7 としては、例えば 1 次電源と 2 次電源とで構成される。そして、1 次電源は AC 1 0 0 V、2 0 0 V、4 0 0 V で ϕ 5 0 Hz、6 0 Hz の交流電源あるいは DC 1 2 V、2 4 V のバッテリー等の直流電源とされ、2 次電源は、パルス電源、高周波電源、商用周波数交流電源が使用される。

【 0 0 2 5 】

このため、放電発生用電源 7 から電圧が印加されると、放電反応部 4 のフィルタ構造体 5 内部の電極棒 1 2 から放電反応部 4 の側面 1 1 に向かって電界の形成とともに放電プラズマ Y が発生する。放電反応部 4 内の電極に印加される電圧は例えば数 k V から数十 k V 程度とされる。

【 0 0 2 6 】

ただし、放電発生用電源 7 から印加される電圧の極性、および放電反応部 4、フィルタ構造体 5、電極棒 1 2 の形状および数は任意である。さらに、放電反応部 4 の側面 1 1 とは個別に電極を設ける構成としてもよい。すなわち、フィルタ構造体 5 内部に電界の形成とともに放電プラズマ Y が発生する構成であればよい。

【 0 0 2 7 】

尚、放電反応部 4 に発生させる放電プラズマ Y を、電子温度のみが高い低温プラズマとすることにより、浄化対象ガス X を加熱することなく放電プラズマ Y を発生させることができる。低温プラズマを使用すれば、放電反応部 4 に投入する電力が放電反応部 4 の内部の電子のエネルギーに利用され、中性分子あるいはイオンの熱エネルギーとして利用されない。このため、エネルギー損失を低減させより低出力の電力で電子を活性化させ、より多くの酸化ラジカルを生成することができる。

【 0 0 2 8 】

また、フィルタ構造体 5 の適用例としては、任意形状の単一のフィルタ構造体 5 の他に、球状、円柱状、円筒状、円盤状等の形状の固体物質であるセラミックペレットを筒状あるいは箱状の容器に複数個充填して開口部を網やフィルタでパッキングした構成、繊維状物質を充填した構成、ハニカム状構造に形成された構

成またはモノリス状構造に形成された構造が可能である。

【0029】

次にガス浄化装置 1 の作用について説明する。

【0030】

まず、浄化対象ガス発生機構 2 において PM を含む浄化対象ガス X が生成され、この浄化対象ガス X はガス流路 3 に導かれる。

【0031】

浄化対象ガス X は、さらにガス流路 3 を流れて放電反応部 4 の内部に流入する。そして、放電反応部 4 内部のフィルタ構造体 5 の内部に導かれる。

【0032】

ここで、放電反応部 4 内部のフィルタ構造体 5 には放電発生用電源 7 の作用で電界の形成とともに放電プラズマ Y が発生する。このため、フィルタ構造体 5 の PM 捕捉機能に加え、フィルタ構造体 5 の内部に形成された電界による電気集塵的效果により浄化対象ガス X に含まれる PM は、フィルタ構造体 5 の内部に捕捉される。

【0033】

また、フィルタ構造体 5 内部には、放電プラズマ Y の作用により O、OH、O₃ 等の酸化ラジカルが生成される。放電プラズマ Y として低温プラズマを発生させた場合は、高エネルギー電子が、浄化対象ガス X の分子と衝突することにより酸化ラジカルが生成される。そして、この酸化ラジカル作用によりフィルタ構造体 5 に捕捉された PM に含まれる炭素等の物質は逐次二酸化炭素 CO₂ へ燃焼処理されて、フィルタ構造体 5 の PM 捕捉機能は再生される。

【0034】

さらに、浄化対象ガス X は、PM を除去された後、放電反応部 4 の外部に排出される。

【0035】

尚、フィルタ構造体 5 は比誘電率が 3 以上の誘電体で構成することにより、放電反応部 4 内部に形成される電界をより強くし、電気集塵的效果とともに PM の捕捉効率を向上させることができる。

【0036】

また、浄化対象ガス発生機構 2 から排出される浄化対象ガス X に NO_x (90 vol%程度が NO) や炭化水素 (C_xH_y) が含まれると、放電反応部 4 では、放電プラズマ Y で生成される酸化ラジカル作用で NO が酸化されて NO_2 、炭化水素が酸化されて部分酸化体 [CHO] 等の化学種が生成される。これらの化学種は、還元分解触媒が存在すると浄化対象ガス X に含まれる NO_x と高温のみならず低温においても効率的に還元反応して NO_x を分解することができる。

【0037】

このため、フィルタ構造体 5 の材料として放電反応部 4 内部に生成された化学種に対応した NO_x を還元分解する還元分解触媒を使用することにより、PM の捕捉および燃焼処理に加えて NO_x を加熱することなく還元分解することができる。

【0038】

尚、フィルタ構造体 5 の材料を NO_x の還元分解触媒で構成したが、フィルタ構造体 5 に NO_x の還元分解触媒を担持させる方法としてもよい。

【0039】

図 3 は図 1 に示すガス浄化装置 1 の放電反応部 4 における NO_x の還元分解を表す図である。

【0040】

排ガスである浄化対象ガス X に含まれる NO_x は一般には NO が 90 vol% 程度を占める。さらに、浄化対象ガス X に炭化水素 (C_xH_y) が含まれると、放電反応部 4 における放電プラズマ Y に伴い発生した酸化ラジカル作用により、 NO と C_xH_y とは酸化されて NO_2 および部分酸化体 [CHO] が生成される。

【0041】

これら放電反応部 4 において生成された化学種は、触媒表面上で触媒反応活性種として作用する。放電反応部 4 において、 NO_2 と [CHO] とから有機ニトロ化合物 [CHON] e t c が生成される。そして、この [CHON] e t c と NO_x (NO/NO_2) とが反応して、 N_2 、 CO_x および H_2O が生成されて NO_x は還元分解される。

【0042】

NO_xの還元分解触媒としては、例えばγ-アルミナが挙げられる。NO_xの還元分解触媒として従来使用されるPt等の貴金属を担持させた三元触媒を用いるとNO_xの分解において有害なN₂Oが発生するが、γ-アルミナを使用すると、このN₂Oの発生量を低減させることができる。

【0043】

すなわち、従来はNO_xを分解するために三元触媒を用い、さらに触媒反応活性化のためにPt等の貴金属を三元触媒に担持させたが、ガス浄化装置1においては、放電反応部4でNO₂、炭化水素の部分酸化体（[CHO]）等の触媒反応活性種となる化学種が生成されるため活性化のためにPt等の貴金属を担持させなくても高温のみならず常温でもNO_xを還元分解することができる。このため、ガス浄化装置1においては、NO_xを還元分解する際に副生されるN₂Oの量を低減させることができる。

【0044】

図4は、酸素O₂の含有率が15vol%の浄化対象ガスXに含まれるNO_xを還元分解したときのNO_xの低減量と浄化対象ガスXの温度の関係を示す図である。

【0045】

図4において、縦軸はNO_xの低減量（任意単位）、横軸は浄化対象ガスXの温度（℃）を示す。●印は、貴金属担持のない高温下でのみNO_x還元分解が有効な触媒（γ-アルミナ）により浄化対象ガスXに含まれるNO_xを還元分解したときのNO_xの低減量を示すNO_x低減曲線aのデータであり、○印は、低温プラズマと低温プラズマの作用で発生した化学種を反応種とする還元分解触媒（γ-アルミナ触媒）により浄化対象ガスXに含まれるNO_xを還元分解したときのNO_xの低減量を示すNO_x低減曲線b、c、dのデータである。

【0046】

尚、低温プラズマの電気エネルギーを変化させて3通りのNO_xの低減量を示すNO_x低減曲線b、c、dが示されている。

【0047】

図4に示すように、貴金属担持のない高温下でのみ NO_x 還元分解が有効な触媒(γ -アルミナ)単独においては、浄化対象ガスXの温度に依存し、 300°C から 500°C の間で温度と NO_x の低減量との勾配が大きく、 300°C 以下では、 NO_x の低減量が著しく減少する。

【0048】

一方、低温プラズマと低温プラズマにより発生した化学種を反応種とする還元分解触媒(γ -アルミナ)により浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解する方法においては、浄化対象ガスXの温度に依存するものの、 NO_x の低減量との勾配は触媒単独を用いた場合よりも小さい。このため、 200°C 以下という低温の温度においても NO_x を一定量低減させることができる。

【0049】

また、低温プラズマと還元分解触媒とで NO_x を還元分解する方法においては、低温プラズマの電気エネルギーの大きさに依存して NO_x の低減量が変化する。すなわち、低温プラズマの電気エネルギーが大きい程、 NO_x の低減量が多くなる。このため、浄化対象ガスXに含まれる NO_x の量あるいは温度変化に応じて、 NO_x の低減量を制御することができる。

【0050】

図5は、酸素 O_2 の含有率が1 vol%の浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解したときの NO_x の低減量と浄化対象ガスXの温度の関係を示す図である。

【0051】

図5において、縦軸は NO_x の低減量(任意単位)、横軸は浄化対象ガスXの温度($^\circ\text{C}$)を示す。●印は、従来用いられる三元触媒により浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解したときの NO_x の低減量を示す NO_x 低減曲線eのデータであり、○印は、低温プラズマと低温プラズマの作用で発生した化学種を反応種とする還元分解触媒により浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解したときの NO_x の低減量を示す NO_x 低減曲線fのデータである。

【0052】

図5に示すように、酸素 O_2 の含有率が1 vol%の浄化対象ガスXについては

、三元触媒により浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解する方法においては、浄化対象ガスXの温度に依存し、 200°C から 400°C の間で温度と NO_x の低減量との勾配が大きくかつ最大値が存在する傾向を示す。

【0053】

一方、低温プラズマと還元分解触媒により NO_x を還元分解する方法においては、浄化対象ガスXの温度に依存せずに NO_x を一定量低減させることができる。

【0054】

図6は、酸素 O_2 の含有率が1 vol%の浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解したときの N_2O の副生量と浄化対象ガスXの温度の関係を示す図である。

【0055】

図6において、縦軸は N_2O の副生量（任意単位）、横軸は浄化対象ガスXの温度（ $^\circ\text{C}$ ）を示す。●印は、従来用いられる三元触媒により浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解したときの N_2O の副生量を示す N_2O 副生曲線gのデータであり、○印は、低温プラズマと低温プラズマの作用で発生した化学種を反応種とする還元分解触媒により浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解したときの N_2O の副生量を示す N_2O 副生曲線hのデータである。

【0056】

図6に示すように、三元触媒により浄化対象ガスXに含まれる NO_x を還元分解する方法においては、図5と同様な傾向を示す。すなわち、三元触媒にはPt等の貴金属が担持されるため、 NO_x の低減量に応じて N_2O が副生される。

【0057】

一方、低温プラズマと還元分解触媒により NO_x を還元分解する方法においては、浄化対象ガスXの温度の増加とともに N_2O の副生量が減少する傾向を示す。しかし、浄化対象ガスXの温度変化に対する N_2O の副生量の変化量は三元触媒を利用する場合よりも小さく、また、三元触媒を利用する場合の N_2O の副生量のピークの50%以下である。

【0058】

すなわちガス浄化装置 1 は、浄化対象ガス X に含まれる PM を捕捉するためにフィルタ構造体 5 内部に電界を形成し、フィルタ構造体 5 の PM 捕捉機能に加えて電気集塵的效果により PM を捕捉する構成である。

【0059】

さらに、フィルタ構造体 5 に捕捉された PM を温度に依存しない放電プラズマ Y により加熱することなく燃焼処理してフィルタ構造体 5 の PM 捕捉機能を再生させる構成である。

【0060】

また、ガス浄化装置 1 は、フィルタ構造体 5 に還元分解触媒としての機能を付加して放電反応部 4 で炭化水素と NO_x とから温度に関係なく生成された化学種である NO_2 および $[\text{CHO}]$ を触媒の反応活性種として浄化対象ガス X から NO_x を加熱することなく還元分解して除去する構成である。

【0061】

従来、各種エンジン発生源からの排ガス中の NO_x や PM 排出についての排出規制が強化されつつある。そこで、PM を除去するための従来のガス浄化装置として PM フィルタで PM を捕捉して加熱ヒータで PM を燃焼する装置が提案される一方、 NO_x を除去するための従来のガス浄化装置として、 NO_x を Pt 等の貴金属を担持した三元触媒により加熱還元分解する装置が提案される。

【0062】

しかし、いずれの従来のガス浄化装置においても、浄化対象ガス X を少なくとも常温以上、例えば 200°C 以上に加熱する必要がある。特に、自動車にガス浄化装置を設け、自動車排ガスを浄化対象ガス X とした場合、排ガス温度は走行状態により変動するため、効率よく安定して PM あるいは NO_x を処理することができない。

【0063】

例えば、エンジン始動時、低速走行時あるいは加速時には、排ガス温度は PM の燃焼あるいは NO_x の還元分解に用いられる触媒の活性化に必要な温度よりも低く、分解反応が十分に進行しない。このため、外部加熱ヒータ源をガス浄化装置に追設することが必要であった。

【0064】

さらに、NO_xを三元触媒により加熱還元分解する際には、三元触媒の活性化のためにPt等の貴金属を担持する必要があった。しかし、Pt等の貴金属によりNO_xを還元分解する過程で亜酸化窒素(N₂O)を副生するという問題があった。

【0065】

しかし、ガス浄化装置1では、浄化対象ガスXに含まれるPMをフィルタ構造体5で捕捉しかつ温度変化の影響をうけにくい放電プラズマ、好ましくは低温プラズマの作用により高温のみならず低温においても継続的かつ高効率に燃焼処理することができる。

【0066】

また、放電プラズマの作用で、NO_xと高温でなくても還元反応する化学種が生成されるため、フィルタ構造体5をNO_xの還元分解触媒で構成することによりPMに加えてNO_xを加熱することなく例えば低温であっても還元分解することができる。

【0067】

また、NO_xの還元分解触媒を活性化させるための貴金属が不要となるため、従来NO_xの還元分解の際に副生されたN₂Oの発生量を低減させることができる。

【0068】

このため、ガス浄化装置1は、PM、NO_x等の有害物質を含み温度変動を伴う浄化対象ガスXを発生する種々の浄化対象ガス発生機構2であっても併設して浄化対象ガスXを浄化させることができる。

【0069】

図7は本発明に係るガス浄化装置の第2の実施形態を示す構成図である。

【0070】

図7に示された、ガス浄化装置1Aでは、放電反応部4内部にフィルタ構造体5に加えて酸化触媒20を設けた構成が図1に示す第1の実施形態によるガス浄化装置1と相違している。他の構成および作用については図1に示すガス浄化装置1と実質的に異ならないため同一の構成には同じ符号を付して説明を省略する。

。

【 0 0 7 1 】

ガス浄化装置 1 Aでは、放電反応部 4 内部にフィルタ構造体 5 に加えて酸化触媒 2 0 が設けられる。この酸化触媒 2 0 はフィルタ構造体 5 とは別に設けられる構成あるいはフィルタ構造体 5 に担持される構成のいずれでもよい。

【 0 0 7 2 】

ガス浄化装置 1 Aでは、放電反応部 4 内部においてフィルタ構造体 5 に捕捉されたPMを、放電プラズマの作用で発生した酸化ラジカルに加えて酸化触媒 2 0 の作用により燃焼処理する構成である。

【 0 0 7 3 】

このためガス浄化装置 1 Aでは、図 1 に示すガス浄化装置 1 よりも効率的にPMを燃焼処理することができる。

【 0 0 7 4 】

図 8 は、図 7 に示すガス浄化装置 1 Aの第 1 の変形例を示す構成図、図 9 は、図 7 に示すガス浄化装置 1 Aの第 2 の変形例を示す構成図、図 1 0 は、図 7 に示すガス浄化装置 1 Aの第 3 の変形例を示す構成図である。

【 0 0 7 5 】

図 8 に示すガス浄化装置 1 Bは、放電反応部 4 内部に酸化触媒 2 0 を設ける代わりに放電反応部 4 と浄化対象ガス発生機構 2 との間のすなわち放電反応部 4 よりも上流のガス流路 3 に酸化触媒 2 0 を設けた構成である。

【 0 0 7 6 】

また、図 9 に示すガス浄化装置 1 Cは、放電反応部 4 内部に酸化触媒 2 0 を設ける代わりに放電反応部 4 から浄化対象ガス X が排出される側の、すなわち放電反応部 4 よりも下流のガス流路 3 に酸化触媒 2 0 を設けた構成である。

【 0 0 7 7 】

一方、図 1 0 に示すガス浄化装置 1 Dは、放電反応部 4 内部に酸化触媒 2 0 を設ける代わりに放電反応部 4 よりも上流のガス流路 3 および放電反応部 4 よりも下流のガス流路 3 の双方にそれぞれ酸化触媒 2 0 を設けた構成である。

【 0 0 7 8 】

ガス浄化装置 1 B、1 C、1 Dのように、酸化触媒 2 0 は放電反応部 4 内部に設

けなくともガス流路 3 中に設けられる構成であれば、図 7 に示すガス浄化装置 1 A と同等な効果を得ることができる。

【0079】

さらに、ガス浄化装置 1 B、1 C、1 D においては、酸化触媒 2 0 と放電反応部 4 とが個別であるため、故障あるいは修理の際に、当該構成のみ交換することができる。

【0080】

図 1 1 は本発明に係るガス浄化装置の第 3 の実施形態を示す構成図である。

【0081】

図 1 1 に示された、ガス浄化装置 1 E においては、図 1 に示す第 1 の実施形態によるガス浄化装置 1 に対し、ガス流路 3 を分岐して並列に複数の放電反応部 4 を設けた構成が相違する。他の構成については図 1 に示す第 1 の実施形態によるガス浄化装置 1 と実質的に同じ構成および作用であるため同一の構成には同じ符号を付して説明を省略する。

【0082】

ガス浄化装置 1 E では、浄化対象ガス発生機構 2 に設けられるガス流路 3 に上流側切換部 3 0 が設けられ、この上流側切換部 3 0 から複数の例えば 2 つのガス流路 3 に分岐される。そして、分岐された各ガス流路 3 には、それぞれ放電反応部 4 が設けられる。

【0083】

さらに、各放電反応部 4 に設けられる浄化対象ガス X の排出用のガス流路 3 は共通の下流側切換部 3 1 に導かれる。そして、分岐した各ガス流路 3 は下流側切換部 3 1 において合流して共通のガス流路 3 に導かれる。

【0084】

上流側切換部 3 0 および下流側切換部 3 1 は、同一の放電反応部 4 に浄化対象ガス X が流れ、さらに排出されるようにガス流路 3 を切り換えることができる。

【0085】

すなわち、ガス浄化装置 1 E は、上流側切換部 3 0 および下流側切換部 3 1 のガス流路 3 切換機能により、浄化対象ガス X が流れる放電反応部 4 を選択して一

定期間ごとに交互に切り換えることができる。

【0086】

そして、ガス浄化装置 1 E においては、ある放電反応部 4 内部のフィルタ構造体 5 に捕捉された PM の量が一定量となると、上流側切換部 30 および下流側切換部 31 のガス流路切換機能によりガス流路 3 が切り換えられて、別の放電反応部 4 に浄化対象ガス X が導かれる。

【0087】

さらに、フィルタ構造体 5 に捕捉された PM の量が一定量となった側の放電反応部 4 には、PM の捕捉量に与える影響が無視できる程度に PM の含有量が少ない例えば空気が導入される。そして、フィルタ構造体 5 に捕捉された PM は空気から発生した低温プラズマにより燃焼処理されて PM 捕捉機能が再生される。

【0088】

すなわち、フィルタ構造体 5 により PM を捕捉している放電反応部 4 とフィルタ構造体 5 に捕捉された PM を低温プラズマにより燃焼処理している放電反応部 4 とが交互にあるいは順次切り替えられる。

【0089】

すなわちガス浄化装置 1 E は、浄化対象ガス X が流れるガス流路 3 を上流側切換部 30 および下流側切換部 31 により並列に分岐して複数の放電反応部 4 を設け、フィルタ構造体 5 により捕捉される PM の量が燃焼処理される量を超えないように、各放電反応部 4 を切り換えて確実にフィルタ構造体 5 の PM 捕捉機能を再生する構成である。

【0090】

ガス浄化装置 1 E においては、浄化対象ガス X に含まれる PM の濃度が比較的に大きい場合においても、フィルタ構造体 5 の PM 捕捉機能を低下させることなく安定して PM を燃焼除去することができる。

【0091】

尚、ガス浄化装置 1 E は、下流側切換部 31 を設けずに、各放電反応部 4 にそれぞれ接続されたガス流路 3 から個別に浄化対象ガス X を排出する構成あるいは、共通のガス流路 3 に導いて浄化対象ガス X を排出する構成としてもよい。

【0092】

図12は本発明に係るガス浄化装置の第4の実施形態を示す構成図である。

【0093】

図12に示された、ガス浄化装置1Fにおいては、図1に示す第1の実施形態によるガス浄化装置1に対し、放電反応部4よりも下流のガス流路3に触媒反応部40を設けた構成が相違する。他の構成については図1に示す第1の実施形態によるガス浄化装置1と実質的に同じ構成および作用であるため同一の構成には同じ符号を付して説明を省略する。

【0094】

ガス浄化装置1Fにおいては、放電反応部4よりも下流のガス流路3に触媒反応部40が設けられる。

【0095】

浄化対象ガス発生機構2から排出される浄化対象ガスXに NO_x が含まれると、放電反応部4では、PMに含まれる炭素等の物質が燃焼処理されるとともに、 NO_2 、炭化水素の部分酸化体（ $[\text{CHO}]$ ）等の化学種が生成される。

【0096】

そこで、放電反応部4で生成された化学種でより触媒活性を示す NO_x の還元分解触媒が触媒反応部40に充填される。触媒反応部40に充填される触媒としては、例えば N_2O の副生を伴わない γ -アルミナが挙げられる。

【0097】

放電反応部4において生成された NO_2 、炭化水素の部分酸化体（ $[\text{CHO}]$ ）等の化学種は、触媒反応部40に導かれる。そして、触媒反応部40において、これらの化学種は触媒反応活性種として作用し、加熱することなく NO_x は還元分解される。

【0098】

さらに、 NO_x が還元分解されて除去された浄化対象ガスXは、触媒反応部40の外部に排出される。

【0099】

すなわち、ガス浄化装置1Fは、放電反応部4よりも下流のガス流路3に NO

x の還元分解触媒を具備する触媒反応部 40 を設け、放電反応部 4 で炭化水素と NO_x とから生成された化学種を NO_x 還元分解触媒の触媒反応活性種として、浄化対象ガス X から NO_x を還元分解して除去する構成である。

【0100】

このため、ガス浄化装置 1F においては、図 1 に示すガス浄化装置 1 において、フィルタ構造体 5 に NO_x の還元分解触媒としての機能を付加した場合と、同等の効果を得ることができるとともに、構成ごとに個別に点検あるいは交換をすることができる。

【0101】

図 13 は本発明に係るガス浄化装置の第 5 の実施形態を示す構成図である。

【0102】

図 13 に示された、ガス浄化装置 1G においては、図 12 に示す第 4 の実施形態によるガス浄化装置 1 に対し、放電反応部 4 よりも上流のガス流路 3 に炭化水素種添加機構 50 を設けた構成が相違する。他の構成については図 12 に示す第 4 の実施形態によるガス浄化装置 1 と実質的に同じ構成および作用であるため同一の構成には同じ符号を付して説明を省略する。

【0103】

ガス浄化装置 1G においては、放電反応部 4 よりも上流のガス流路 3 に炭化水素種添加機構 50 が設けられる。

【0104】

この炭化水素種添加機構 50 は、ガス流路 3 に炭化水素種を添加する。炭化水素種の添加方法としては、プロパン、プロピレン等のガス状炭化水素種を直接添加する方法や固体あるいは液体の炭化水素種をガス化して添加する方法が好ましい。

【0105】

そして、添加された炭化水素種は放電反応部 4 に導かれ、 NO_x の還元分解における触媒反応活性種が生成される。

【0106】

すなわち、ガス浄化装置 1G は、ガス流路 3 に炭化水素種を添加することによ

り、より効率的に安定した NO_x の還元分解における触媒反応活性種を生成して NO_x を分解除去する構成である。

【0107】

このため、ガス浄化装置1Gにおいては、例えば浄化対象ガスXがディーゼルエンジンのリーン燃焼により生成する排ガスのような炭化水素の含有量が少ない浄化対象ガスXである場合であっても、触媒反応活性種を生成して NO_x を効率的に除去することができる。

【0108】

尚、ガス浄化装置1A, 1B, 1C, 1D, 1E, 1F, 1Gは複合的に構成してもよい。例えば、ガス流路3に並列に複数の放電反応部4を設け、さらに触媒反応部40、炭化水素種添加機構50あるいは酸化触媒20を設ける構成としてもよい。

【0109】

【発明の効果】

本発明に係るガス浄化装置およびガス浄化方法においては、浄化対象ガスから粒子状物質等の有害物質を加熱することなく低温でより効率的に機能を損なうことなく捕捉し除去することにより浄化対象ガスを浄化することができる。

【0110】

また、ガス浄化装置に NO_x を還元分解する還元分解触媒機能を付加することにより、PMの捕捉および燃焼処理に加えて NO_x を加熱することなく低温においても還元分解することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明に係るガス浄化装置の第1の実施形態を示す構成図。

【図2】

図1に示す放電発生用電源に接続される電極の構成例および放電反応部の詳細構成例を示す図。

【図3】

図1に示すガス浄化装置の放電反応部における NO_x の還元分解を表す図。

【図 4】

酸素 O_2 の含有率が15vol%の浄化対象ガスに含まれる NO_x を還元分解したときの NO_x の低減量と浄化対象ガスの温度の関係を示す図。

【図 5】

酸素 O_2 の含有率が1vol%の浄化対象ガスに含まれる NO_x を還元分解したときの NO_x の低減量と浄化対象ガスの温度の関係を示す図。

【図 6】

酸素 O_2 の含有率が1vol%の浄化対象ガスに含まれる NO_x を還元分解したときの N_2O の副生量と浄化対象ガスの温度の関係を示す図。

【図 7】

本発明に係るガス浄化装置の第2の実施形態を示す構成図。

【図 8】

図7に示すガス浄化装置の第1の変形例を示す構成図。

【図 9】

図7に示すガス浄化装置の第2の変形例を示す構成図。

【図 10】

図7に示すガス浄化装置の第3の変形例を示す構成図。

【図 11】

本発明に係るガス浄化装置の第3の実施形態を示す構成図。

【図 12】

本発明に係るガス浄化装置の第4の実施形態を示す構成図。

【図 13】

本発明に係るガス浄化装置の第5の実施形態を示す構成図。

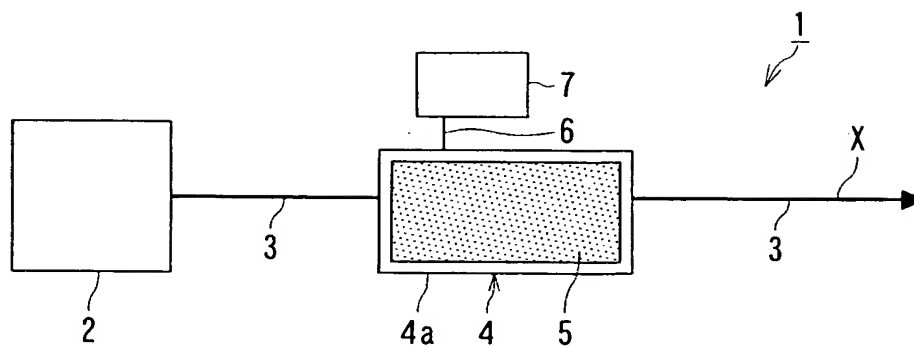
【符号の説明】

- 1、1A、1B、1C、1D、1E、1F、1G ガス浄化装置
- 2 浄化対象ガス発生機構
- 3 ガス流路
- 4 放電反応部
- 4a 反応容器

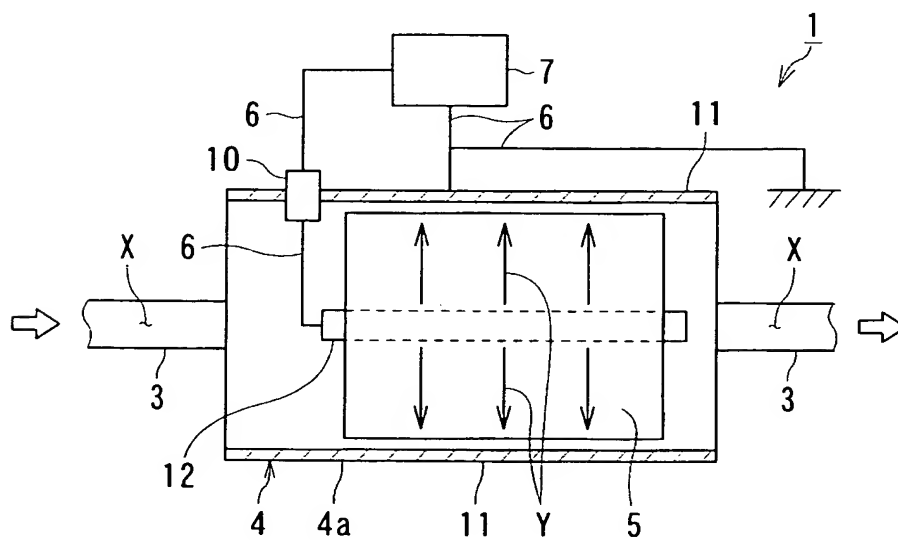
- 5 フィルタ構造体
- 6 電気ケーブル
- 7 放電発生用電源
- 1 0 コネクタ
- 1 1 側面
- 1 2 電極棒
- 2 0 酸化触媒
- 3 0 上流側切換部
- 3 1 下流側切換部
- 4 0 触媒反応部
- 5 0 炭化水素種添加機構
- X 浄化対象ガス
- Y 放電プラズマ
- a, b, c, d, e, f NO_x 低減曲線
- g, h N₂O 副生曲線

【書類名】 図面

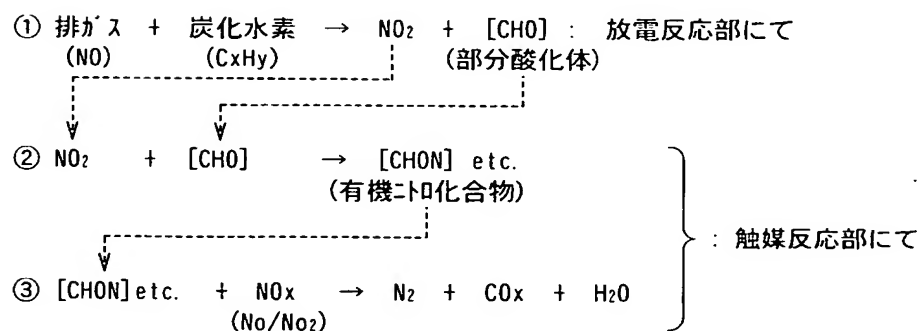
【図 1】



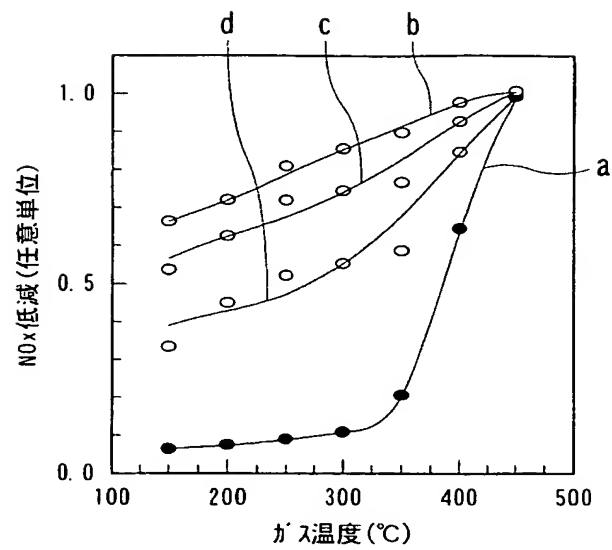
【図 2】



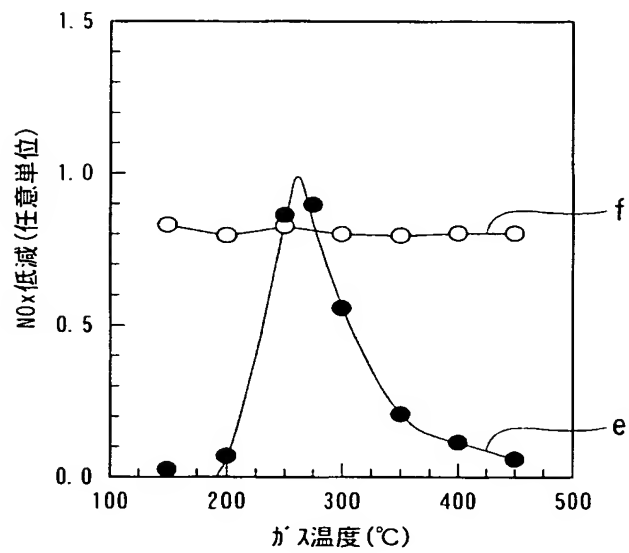
【図 3】



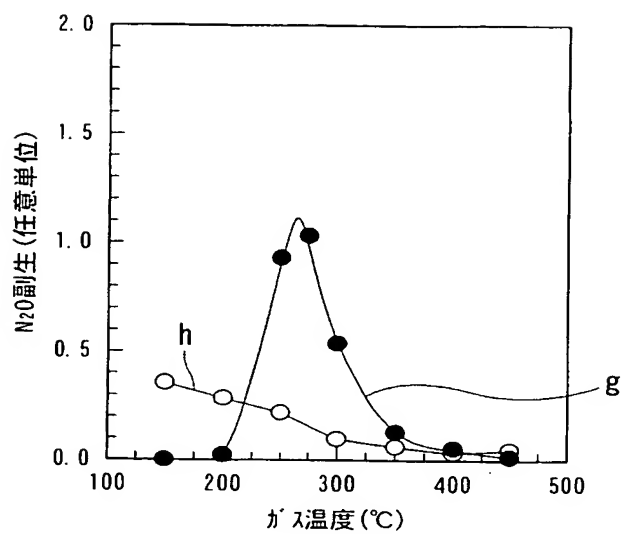
【図 4】



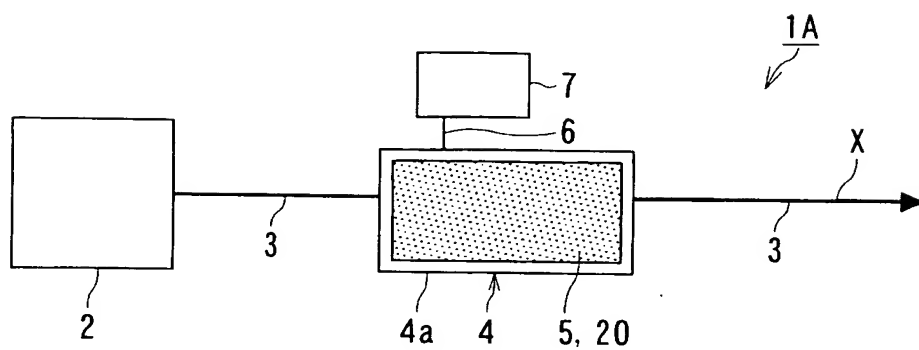
【図 5】



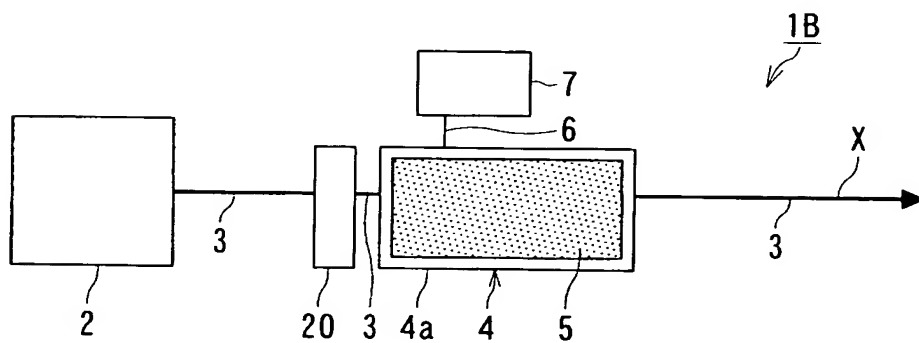
【図 6】



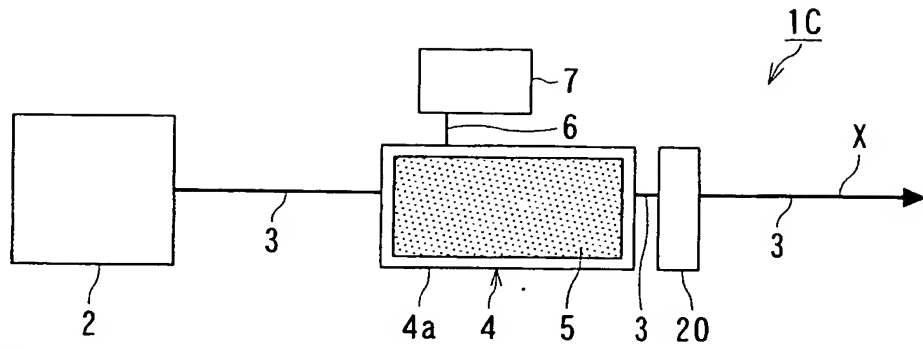
【図 7】



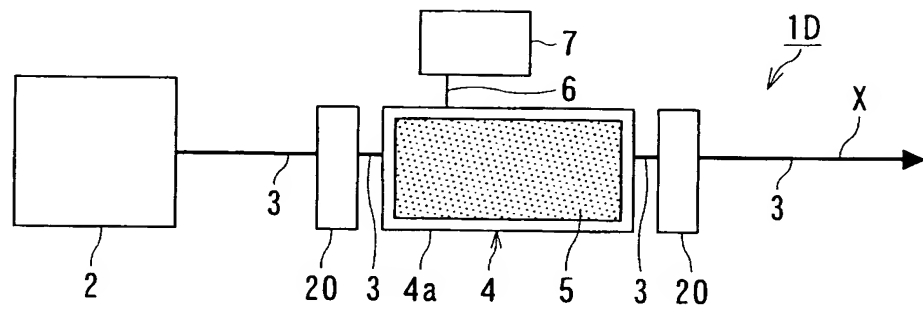
【図 8】



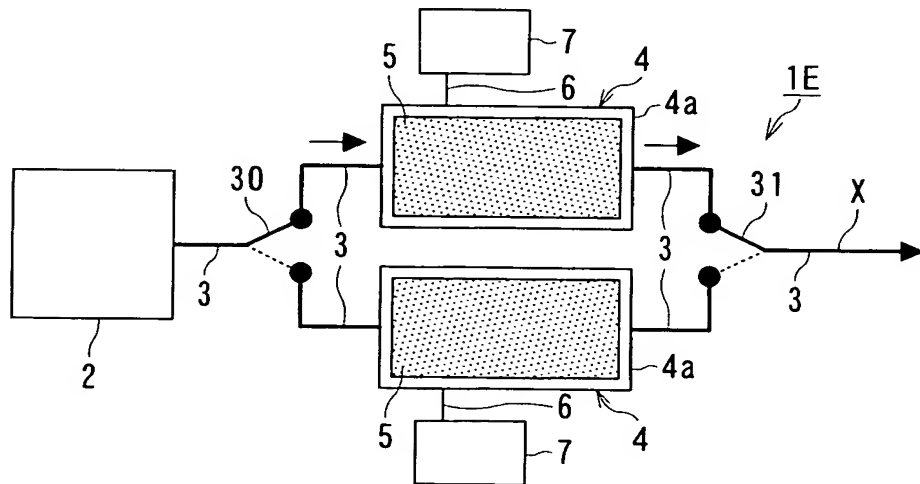
【図 9】



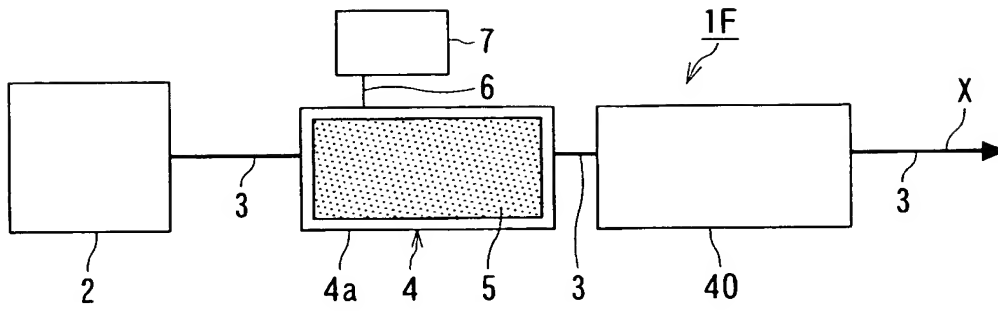
【図 10】



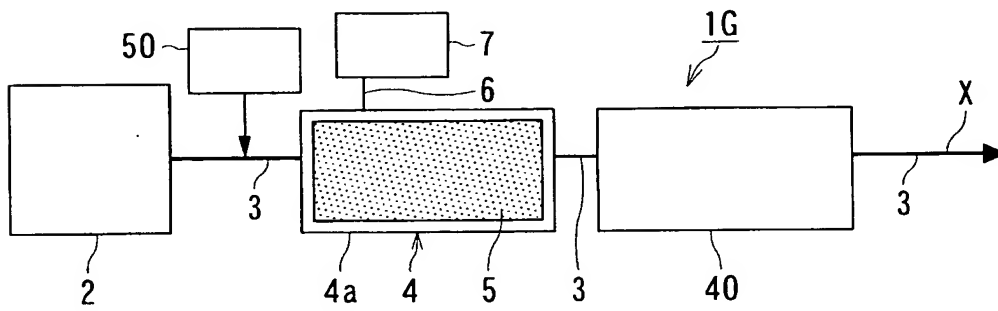
【図 11】



【図 12】



【図 13】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 粒子状物質、窒素酸化物等の有害物質を含む浄化対象ガスから有害物質を加熱することなく常温でより効率的に除去し、浄化対象ガスを浄化することができるガス浄化装置である。

【解決手段】 ガス浄化装置 1 は、浄化対象ガス X が流れるガス流路 3 に放電反応部 4 を設け、この放電反応部 4 の内部に粒子状物質捕捉機能を有するフィルタ構造体 5 が浄化対象ガス X がその内部を通過可能に設けられる一方、放電反応部 4 には放電発生用電源 7 が接続された構成である。この放電発生用電源 7 は、放電反応部 4 の内部に電界を形成するとともに放電プラズマを発生し、フィルタ構造体 5 の内部において浄化対象ガス X に含まれる粒子状物質がフィルタ構造体 5 の粒子状物質捕捉機能に加えて電界の形成に伴う電気集塵的效果により捕捉され、さらに捕捉された粒子状物質は、前記放電プラズマの作用により燃焼処理され、フィルタ構造体 5 の粒子状物質捕捉機能が再生されるように構成される。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 2 - 2 8 9 9 8 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 3 0 7 8]

1 . 変更年月日

2 0 0 1 年 7 月 2 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号

氏 名

株式会社東芝

.

.

.

.